

# 主論文の要約

## <木材の強度発現機構に関する微細構造学的研究>

名古屋大学大学院生命農学研究科  
博士後期課程  
専攻 生物圏資源学専攻  
講座 生物材料科学講座  
氏名 LEE Changgoo

### 第1章

木材は生物劣化を生じない環境下においては高い耐久性を有しており、たとえば日本最古の木造建築である法隆寺五重塔は築後1300年を超えてなお現存している。しかし、生物劣化とは別に、木材が老化（古材化）により力学性能を変化させることもよく知られており、そのメカニズムの解明と耐久性の評価について研究発展が望まれている。日本は木造古建築が多く、またこれに伴い試料が得やすいことから古材の研究が進んでいる。しかし、力学性能に関する研究は実大材（建築用材サイズ）や小試験片レベルの巨視的な評価にとどまっており、微細構造レベルでの理解は不十分である。このようなことから、本研究では木材の微細構造の変形挙動に及ぼす古材化の影響を明らかにすることを旨とし、XRD測定法により木材の微細構造レベルでの情報を得ることにした。

XRD測定法は木材細胞壁内に存在するセルロース鎖の結晶質による微細複合構造の研究にも非常に有用であり、様々な研究がなされている。XRD測定法を用いた木材の微細構造の観察では、主に木材の細胞壁内2次壁のS<sub>2</sub>層のマイクロフィブリル傾角（Microfibril angle; MFA）測定に古くより多く用いられている。なお、木材2次壁に存在しているS<sub>2</sub>層は、他の層よりも最も厚いため、木材の全般的な強度性質に影響を与えると木材科学分野から数多く報告されている。これにより、木材の破壊試験を伴って、特に木材細胞壁中のS<sub>2</sub>層に注目し、XRD測定法を用いてセルロース鎖の力学性能を調べた研究が複数ある。

また、現在までのXRDの測定法を用いた木材の力学的性能評価に関する研究の共通点は、木

材試験片の厚さは~2mmで薄膜のような非常に薄い木材薄片を用いており、樹木の年輪幅を含めた試験片ではなく、早材と晩材を分離した試験片により行われてきた。なお、これまで明らかになってきた木材の力学性能の測定因子は、木材の細胞壁内S<sub>2</sub>層で議論されており、S<sub>1</sub>層およびS<sub>3</sub>層の観点からの木材の微細構造的強度性能についての研究は木材科学分野で新たな試みである。しかしながら、従来のXRD測定装置は、木材細胞壁中の比較的薄い壁層であるS<sub>1</sub>層およびS<sub>3</sub>層を測定するためにはビームや波長の強さが弱いという問題があり、より強力な光源を持つXRD装置を用いることが必要となっている。そこで本研究では、比較的薄い壁層であるS<sub>1</sub>層およびS<sub>3</sub>層をより明瞭に測定できるばかりではなく、段階的な荷重負荷により発生する木材の剛性の測定を明確に観察するために非常に強い波長のシンクロトロン光を用いた。木材の持つ複雑な階層構造の影響を考慮するため、複数の年輪幅を有する厚さ5mmの木材試験片を用い、木材の長さ方向に単軸荷重（引張や圧縮）を負荷し、これにより生じる木材そのもの（以後、木材バルクと呼ぶ）とセルロース鎖の力学的特性について検討した。まず、シンクロトロン光を用いた強度実験を行う前に、無応力状態で木材強度の重要な因子であるセルロース鎖の結晶部に対する物理的特性を解析した。さらに、250年以上経過したアカマツ材と新材の両方で解析し、これらに有意な差があるかを検定した。具体的には、2種類のXRD回折法（透過法および反射法）を用いて、観察可能な木材細胞壁内のセルロース鎖の領域に対する物理的特性をXRD測定法を応用して解析を行った。さらに、引張や圧縮の

単軸荷重負荷下で発生する木材の剛性をマクロ的な視点およびミクロ的な観点で検討し，XRD測定による木材のミクロ的力学挙動の解析方法を提案した．続いて，木材の微細構造が有する力学挙動の特性に基づいて，本研究の目標である経年木材が有する力学挙動を新材との比較し分析を行った．これにより，木材の経年化が木材およびセルロース鎖の力学的性能に与える影響を観察した．また以前の経年木材の研究事例等との比較を行って，経年木材の有する力学的特性に関する解析を微細構造的観点から試みた．

## 第2章

### 2.1 供試材

供試材は，伐採後数年間養生した木材（以降，新材とする）と築250年以上経過した古建築の小屋梁材（以降，古材とする）で，いずれも樹種はアカマツ（Japanese red pine, *Pinus densiflora*）である．試験片の形状はFig. 2.1に示すように木材の繊維方向を長軸とするダンベル型で，寸法は長さ（繊維方向）60 mm，幅（半径方向または接線方向）10 mm，厚さ（接線方向または半径方向）5 mmである．試験片中央部には断面寸法が5 mm × 5 mm となるようにテーパを施した．この形状は，続報で行う引張負荷下におけるXRD測定のためである．試験片は供試材が気乾状態に達した後で作成した．Table 2.1に試験片の数と物性（密度，年輪幅，晩材率，含水率）を示す．試験片はシンクロトロン光によるXRD実験を行う前に，温度  $25 \pm 3^\circ\text{C}$ ，湿度  $40 \pm 3\%$  の実験環境下で24時間以上養生した．

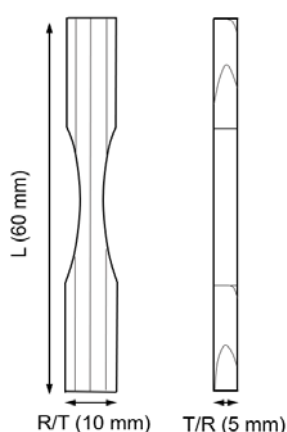


Fig. 2.1 Schematic of specimen.

Table 2.1 Physical properties of recent and aged specimens

Type	Density ( $\text{kg m}^{-3}$ )	AW (mm)	LW (%)	MC (%)
Recent	501	2.7	25.9	8.4
n=19	(48)	(1.1)	(10.6)	(0.2)
Aged	458	1.7	21.1	8.5
n=20	(34)	(0.7)	(6.6)	(0.4)

Numbers in parentheses denote standard deviations. AW: Annual ring width, LW: Latewood moiety, MC: Moisture content.

### 2.1.2 シンクロトロン光を用いたXRD測定

XRD測定はあいちシンクロトロン光センターのビームラインBL8S1で行った．照射したシンクロトロン光の波長は9.16 KeV (1.35Å)であり，測定したBragg角はセルロース(004)面（約 $d=2.59\text{\AA}$ ）に対応する $26.5^\circ \sim 35^\circ$ である．1回のXRD測定の所要時間は330秒とした．試験片で回折された光は半導体検出器（PILATUS-100K）を介して2D回折図形として収録した．

Fig. 2.2にはそれぞれのシンクロトロン光測定法と細胞壁層構造の関係を示した．Fig. 2.2(a)に示す透過法では試験片の繊維方向（L）に直交する004面（セルロース格子（004）面の面間隔 $d$ は $S_2$ 層の配向性にほぼ平行）が測定される．一方，Fig. 2.2(b)に示す反射法では試験片の半径方向（R）または接線方向（T）と直交する004面（セルロース格子（004）面の面間隔 $d$ は $S_1$ 層や $S_3$ 層の配向性にほぼ平行）が測定される．この説明により，Fig. 2.2(a)に示す透過法では主に2

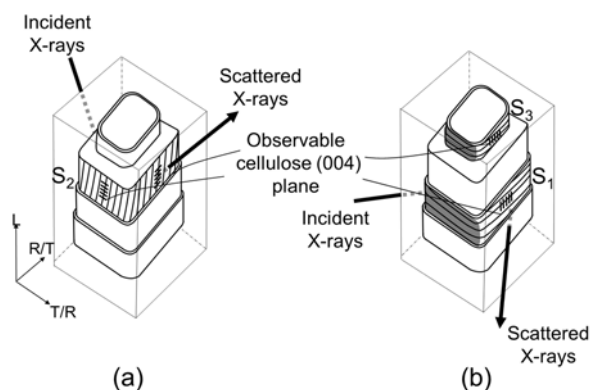


Fig. 2.2 Schematic of observable conditions for cell wall structure on two modes of diffraction method. (a) Transmission mode, (b) reflection mode.

次壁内の S<sub>2</sub> 層のセルロース (004) 面が, 一方, Fig. 2.2(b) に示す反射法では主に 2 次壁内の S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層のセルロース (004) 面が測定できると考えられる.

## 2.2 結果と考察

### 2.2.1 2D 回折図形

XRD 測定により得られたセルロース (004) 面の代表的な 2D 回折図形を Fig. 2.3 に示す. これらの 2D 回折図形において新材と古材の違いは見られなかった. 図示するように, 測定法により 2D 回折図形は大きく異なり, 透過法のパターンは回折角の (2θ) 幅が比較的狭く, 方位角分布 (Azimuthal) 方向では図の中央部の強度が強い のに対して, 反射法では全体に 2θ 幅が広く, 特に 方位角分布方向の両端で大きく膨らんだパターンを示した.

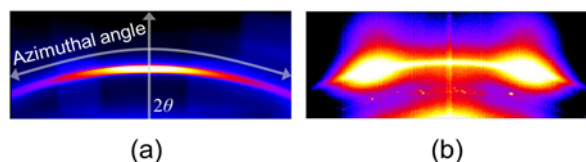


Fig. 2.3 2D diffraction patterns of the cellulose (004) plane. (a) Transmission mode, (b) reflection mode.

### 2.2.2 方位角分布曲線

Fig. 2.4 に方位角分布曲線の一例を示す. Fig. 2.4 から明らかなように, 回折法の違いによって方位角分布曲線の形状が異なった. 特に, Fig. 2.3 (b) のように方位角分布方向の両端で大きく膨らんだ 2D 回折図形の場合には, 2つのピークを持つ方位角分布曲線が得られた. Cave (1966) と Meylan (1967) が提案したセルロースマイクロフィブリル傾角(MFA)の算出式(1), (2) を用いて, 測定されたセルロースの主な配向方向を算出した.

$$\text{MFA} = 0.6 \times T \quad (1) \quad (\text{透過法})$$

$$\text{MFA} = 0.6 \times (90 - T) \quad (2) \quad (\text{反射法})$$

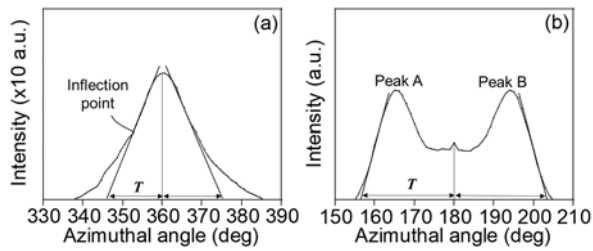
ここで,  $T$  は half the curve width (deg) で, Fig. 2.4 (a) に例示した.  $T$  の解析結果, 透過法の MFA は約 9°, 反射法の MFA は約 75°であり, 新材と古材の違いは見られなかった.

### 2.2.3 X 線回折強度曲線

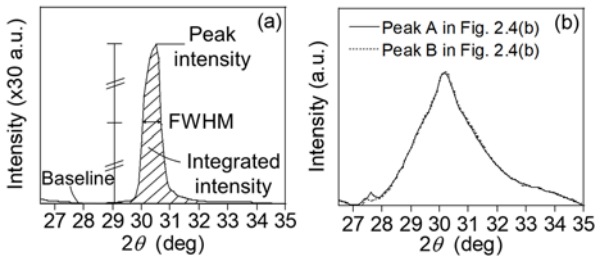
Fig. 2.3 に例示した 2D 回折図形より 2θ 回折強度曲線を求めた. ここでは, Fig. 2.4 に例示した方位角分布曲線のピーク値±1°の方位角分布の範囲について, その範囲内の回折強度の平均値を 2θ 回折強度曲線とした. Fig. 2.5 に示す 2θ 回折強度曲線について, 非線形回帰分析法の Split-pseudo Voigt 法を用いて Fig. 2.5(a) に示すようなフィッティングを行い, Bragg の式(3)によりセルロース格子 (004) 面の面間隔  $d$ , 半値幅 FWHM (full width at half maximum), ピーク強度, 2θ 回折強度曲線とベースラインが囲む面積 (以降, 2θ 累積強度とよぶ) を求めた.

$$n\lambda = 2d\sin\theta \quad (3)$$

まず, 透過法のセルロース格子 (004) 面の面間隔  $d$  は, 新材と古材が 2.58(0.02), 2.59(0.01) となり, 反射法では新材と古材が 2.63(0.03), 2.62(0.03)であった. また, 透過法の FWHM の解析値は, 新材と古材が 0.58(0.05), 0.58(0.12) となり, 反射法では新材と古材が 2.03(0.46), 1.87(0.66)であった. 一方, ピーク強度や 2θ 累積強度が大きいことは測定したセルロースの結晶部の量が多いことを意味する. これらの結果については透過法と反射法それぞれの全試験片の平均値の比 (透過法/反射法) でまとめた. 両者の比率ピーク強度では 57~59 倍, 2θ 累積強度では 13~14 倍であった. ただし, 透過法が S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層のセルロースを測定していることを考えると, Fig. 2.2(b) に示したように, シンクロトロン光の入射方向と S<sub>1</sub> 層や S<sub>3</sub> 層のセルロース配向角との関係から, 細胞壁の全 4 側面のうち半分の 2 側面しか測定していないと考えられる. そこで, 反射法では 2θ 累積強度の 2 倍値を, また透過法の場合には 2θ 累積強度の値そのものをセルロース結晶部の推定量とし, 両者を比較した. その結果, 透過法のセルロースの推定量は反射法の約 7 倍 (新材: 6.49 倍, 古材: 7.16 倍) となった. 本研究で測定しているセルロースが結晶領域のみであること, また, 上記の透過法と反射法の比率 (約 7 倍) は最も配向の強いところの結果であることを考慮すると, 第 2 章で解析



**Fig. 2.4** Azimuthal profiles of the cellulose (004) plane. (a) Transmission mode, (b) reflection mode.



**Fig. 2.5**  $2\theta$  profiles of the cellulose (004) plane. (a) Transmission mode, (b) reflection mode.

したセルロース結晶部の推定量の比率は、細胞壁 2 次壁内のセルロース分布を反映するものであると考えられる。さらに、これらの結果について 250 年の経年の影響は認められなかった。

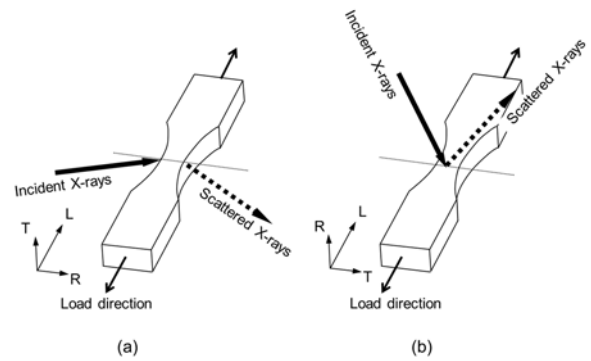
### 第 3 章

#### 3.1 供試材

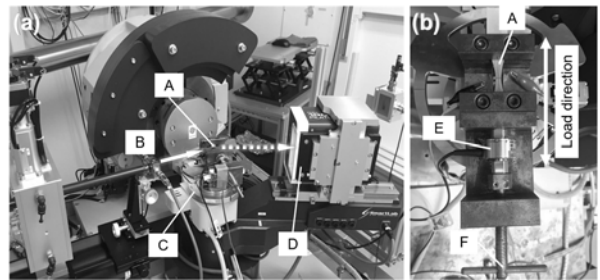
供試材は前章と同じで、伐採後数年間養生したアカマツ (Japanese red pine, *Pinus densiflora*) 材である。試験片は供試材が気乾状態に達した後で作成した新材のみである。

#### 3.1.2 シンクロトロン光を用いた XRD 測定

XRD 測定は、前章と同様にあいちシンクロトロン光センターのビームライン BL8S1 で行った。Fig. 3.2 に示すように、試験片を自作の加力治具に固定して、ビームライン内のゴニオメータに設置した。回折法は、Fig. 3.1 に示したように仮道管壁各層のセルロース鎖を測定するために、透過法 (本研究では  $S_2$  層が測定できる) と反射法 (本章では  $S_1$  層と  $S_3$  層が測定できる) の 2 種類の方法を採用した。本章では、シンクロトロン光が年輪 (早材と晩材) を横切るように測定した。すなわち、透過法 ( $S_2$  層の測定) では LR 面を試験片の幅方向, LT 面を試験片の厚さ方向とした。一方、反射法 ( $S_1$  および  $S_3$  層の測定) では



**Fig 3.1:** Schema of specimens (a) Transmission, (b) reflection.



**Fig 3.2:** Set up for XRD measurement under uniaxial loading. (a) Synchrotron facility, (b) self-making loading apparatus. A: specimen, B: incident X-rays, C: goniometer, D: semi-conductor detector, E: load cell, F: loading apparatus.

LT 面を試験片の幅方向, LR 面を試験片の厚さ方向とした。

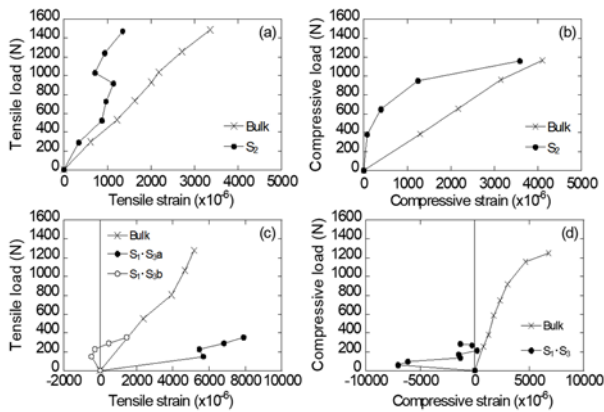
#### 3.1.3 負荷方法

試験片に対する単軸負荷 (引張または圧縮) は自作の加力治具により行った (Fig.3.2(b))。試験片のバルクのひずみを測定するために、試験片の中央部には材軸方向に沿って単軸のひずみゲージを貼付した。試験片の荷重とひずみの関係は、治具に取り付の最大容量 2kN の荷重計とひずみゲージによりデータロガーを介して読み取った。破壊に至るまで 5~10 段階程度の荷重レベルを設定し、それらの荷重レベル毎に XRD 測定を行った。1 回の XRD 測定の所要時間は 330 秒で、この間の荷重の緩和は引張試験で  $36\pm 30N$ 、圧縮試験で  $21\pm 7N$  程度であった。試験片で回折された光は半導体検出器を介して 2D 回折図形として収録した。

### 3.2 結果と考察

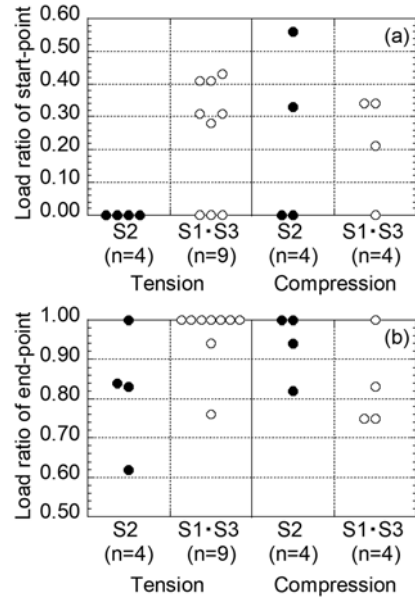


### 3.2.1 荷重-ひずみの関係



**Fig 3.3:** Examples of the load-strain relations obtained by two XRD methods. (a) and (c) Tension, (b) and (d) compression. Bulk: strain obtained by strain gauge, S<sub>2</sub>: cellulose strain under transmission method, S<sub>1</sub>·S<sub>3</sub>: cellulose strain under reflection method.

Fig. 3.3 に試験片およびセルロース鎖に係る荷重-ひずみ関係を示す。(a)~(d)はそれぞれ引張、圧縮荷重下における S<sub>2</sub> 層 (透過法), S<sub>1</sub> 層と S<sub>3</sub> 層 (反射法) の測定結果である。(c)に示す S<sub>1</sub> 層と S<sub>3</sub> 層の引張試験例では方位角分布曲線で2つのピークが出現したため、それぞれのピークに対する 2θ 回折強度曲線を解析し、2つの荷重-ひずみ関係を求めた。図の横軸のひずみに関して、×印は木材バルク (試験片に添付したひずみゲージによる測定値) の結果、●と○印はセルロース鎖ひずみ (004 面の間隔  $d_{004}$  の変化率  $\Delta d_{004}/d_{004(0)}$ ) の結果である。セルロース鎖の変形挙動は木材バルクの挙動と必ずしも同調していない。このことは、仮導管壁各層のセルロース鎖の力学挙動は単純ではないことを示している。まず、S<sub>2</sub> 層のセルロース鎖の力学挙動においては、Fig. 3.3(a)の引張荷重下において、バルク (×) および S<sub>2</sub> 層のセルロース鎖 (●) とともに線形的な力学挙動を示した。S<sub>2</sub> 層のセルロース鎖はバルクの概ね半分程度のひずみを生じ、また、負荷増加の途中で、セルロース鎖の伸びが戻る現象を示しており、マトリクスとセルロース鎖の界面で滑りが生じたことを示唆している。これに対して、Fig. 3.3(b)の圧縮荷重下では、バルクの力学挙動 (×) は引張と同様に線形的であるが、S<sub>2</sub> 層のセルロース鎖 (●) は引張と異なる挙動を示した。すなわち、負荷直後は圧縮ひずみをほとんど生じず、大きい負荷が作用するようにな



**Fig 3.4:** Ratio of the start- and end-point loads for rigidity manifestation to the maximum load.

ってからようやく縮み始めた。負荷の終盤になると、セルロース鎖の圧縮ひずみはバルクの圧縮ひずみの 60%程度まで縮んだ。

一方、S<sub>1</sub> 層と S<sub>3</sub> 層 (反射法) の引張、圧縮荷重下における力学強度を調べた。Fig. 3.3(c), (d) に示すように、S<sub>1</sub> 層と S<sub>3</sub> 層の力学挙動は S<sub>2</sub> 層の力学挙動 (Fig. 3.3(a), (b)) と異なった。S<sub>1</sub> 層と S<sub>3</sub> 層のセルロース鎖は荷重方向から大きく傾いているため、セルロース鎖に作用する荷重は非常に小さい (1/4P 程度)。まず、引張荷重下の場合、Fig. 3.3(c)に示すように、わずかな引張荷重であるがセルロース鎖は変形挙動を示した。Fig. 3.3(c)に示す2つのデータは同一試験片の同時の挙動であるが、両者は異なる挙動を示した。一つのデータはバルクのひずみ以上の引張ひずみを示したが、もう一方のデータは負荷直後に圧縮ひずみを示し、その後、伸びに転じる挙動を示した。一方、圧縮荷重下では様々な荷重-ひずみ関係が得られた。Fig. 3.3(d)に図示した試験例では、負荷直後に引張ひずみを示してその後に圧縮に転じる挙動を示した。ほかの試験片では、負荷直後から引張ひずみを示すものや、微妙にセルロース鎖が伸縮しているもののその変形量は非常に小さいものなどもあり、荷重-ひずみ関係は特定の傾向を示さなかった。

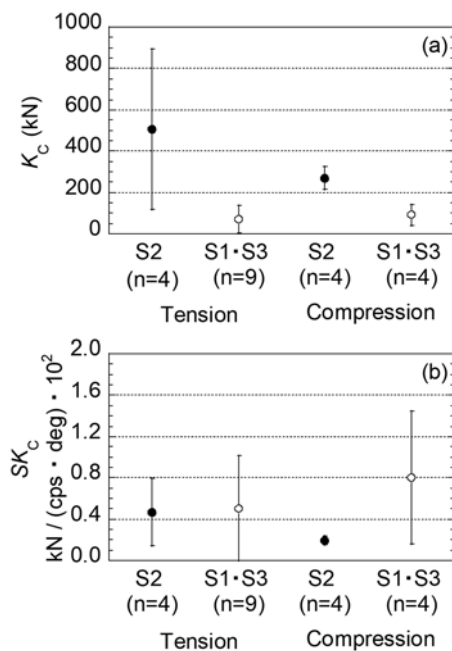
### 3.2.2 セルロース鎖が剛性を発現および消失する荷重レベル

Fig. 3.3 に例を示した荷重-ひずみ関係から、セルロース鎖が剛性を発現および消失する荷重レベル (Start point および end point) を解析し、その結果を Fig. 3.4 に示す。これより、Start-point load は、引張の S<sub>2</sub> 層ではすべての試験片で荷重レベル 0%であったが、S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層では 2 群に分かれており、1 群は荷重レベル 0%、もう 1 群は平均 35%であった。圧縮では、S<sub>2</sub> 層の結果も 2 群に分かれ、1 群は荷重レベル 0%、もう 1 群は 33%と 56%であった。圧縮の S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層では、1 つのデータを除き、平均 30%であった。一方、End-point load は、引張の S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層で 100%に達したデータが比較的多く、それ以外の場合には、引張の S<sub>2</sub> 層で平均 82%、圧縮の S<sub>2</sub> 層で平均 94%、圧縮の S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層で 83%であった。

上記のように、引張と圧縮、S<sub>2</sub> 層と S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層で Start-point load, end-point load それぞれの荷重レベルが異なることが分かった。

### 3.2.3 セルロース鎖が剛性

Start-point load と end-point load 間のセルロース鎖の荷重-ひずみ関係を線形回帰分析して、セルロース鎖の剛性を求めた。結果を Fig. 3.5 に示した。



**Fig 3.5:** Rigidity of cellulose. (a)  $K_C$ : Rigidity of cellulose obtained by lattice space. (b)  $SK_C$ : standardized rigidity of cellulose with the cellulose amount.

Fig. 3.5(a)は剛性  $K_C$  そのもの、Fig. 3.5(b)は剛性を  $2\theta$  累積強度  $I_{2\theta}$  で除した基準化剛性 ( $SK_C$ ) である。まず、Fig. 3.5(a)に示す剛性  $K_C$  については、透過法 (S<sub>2</sub> 層) と反射法 (S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層) の差が明瞭である。この中で、S<sub>2</sub> 層の引張剛性はバラツキが大きいものの、平均値が他に比べて大きい。また、S<sub>2</sub> 層の剛性は引張、圧縮とも S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層よりも大きく、引張で約 7 倍、圧縮で約 3 倍となった。なお、S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層の剛性は引張と圧縮で同程度であった。

## 第 4 章

### 4.1.1 供試材

供試材は第 2 章の古材と同じで、築 250 年間建材として利用されたアカマツ (Japanese red pine, *Pinus densiflora*) 材である。試験片の寸法は第 2, 3 章と同じである。本章では、古材の試験片を用いることで、第 3 章で考察した新材の力学挙動との比較を行った。

### 4.1.2 シンクロトロン光を用いた XRD 測定

XRD 測定は、あいちシンクロトロン光センター (Aichi synchrotron radiation center) の薄膜 X 線回折用ビームライン (BL8S1) で行った。試験片を自作の加力治具に固定して、ビームライン内のゴニオメータに設置した。回折法は、仮道管壁各層のセルロース鎖を測定するために、透過法 (本研究では S<sub>2</sub> 層が測定できる) と反射法 (本章では S<sub>1</sub> 層と S<sub>3</sub> 層が測定できる) の 2 種類の方法を採用した。測定方法等の詳細については第 2, 3 章と同様であるのでここでは省略する。

### 4.1.3 シンクロトロン光を用いた XRD 測定

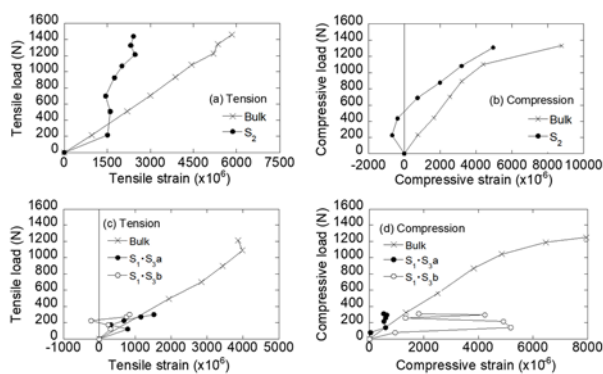
試験片に対する単軸負荷 (引張または圧縮) は自作の加力治具により行った。試験片のバルクのひずみを測定するために、試験片の中央部には材軸方向に沿って単軸のひずみゲージを貼付した。試験片に対する荷重とひずみの関係は、加力治具に取り付けた荷重計とひずみゲージによりデータロガーに収録した。破壊に至るまで 5~10 段階程度の荷重レベルを設定し、それらの荷重レベル毎に XRD 測定を行った。これらの負荷

方法についても第 3 章と同様であるので、詳細は省略する。

## 4.2 結果と考察

### 4.2.1 荷重-ひずみの関係

Fig. 4.1 に古材試験片とそのセルロース鎖に係る荷重-ひずみ関係を示す。Fig. 4.1(a)~(d)はそれぞれ引張、圧縮荷重下における  $S_2$  層(透過法)、 $S_1$  層および  $S_3$  層(反射法)の測定結果である。なお、Fig. 4.1(c), (d)に示す  $S_1$  層および  $S_3$  層の XRD 測定では方位角分布曲線で 2 つのピークが出現したため、それぞれのピークに対する  $2\theta$  回折強度曲線を解析し、2 つの荷重-ひずみ関係を描いた。図の横軸のひずみに関して、×印は木材バルクの結果、●と○印はセルロース鎖ひずみの結果である。図によれば、第 3 章の新材の場合と同様に、いずれの負荷に対してもセルロース鎖の変形挙動は古材バルクの挙動とは必ずしも同調していない。このことは、古材の場合でも仮道管壁各層のセルロース鎖の力学挙動は単純ではないことを示している。Fig. 4.1(a)の引張荷重下において、古材 Bulk (×) および  $S_2$  層セルロース鎖 (●) は、ともに線形的な力学挙動を示した。 $S_2$  層セルロース鎖のひずみは木材 Bulk のひずみより小さく、また、負荷増加の途中で、セルロース鎖の伸びが止まる現象を示しており、マトリクスとセルロース鎖の界面で滑りが生じたことを示唆している。これに対して、Fig. 4.1(b)

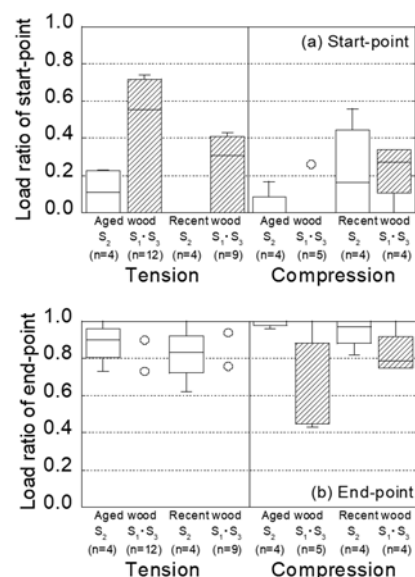


**Fig 4.1:** Examples of the load-strain relations obtained by two XRD methods. (a) and (c) Tension, (b) and (d) compression. Bulk: strain obtained by strain gauge,  $S_2$ : cellulose strain under transmission method,  $S_1$ - $S_3$ : cellulose strain under reflection method.

の圧縮荷重下では、 $S_2$  層のセルロース鎖 (●) の挙動は引張荷重下とは異なり、負荷初期に一旦、引張ひずみを示した後、ほぼ線形的に木材 Bulk に追従するように圧縮ひずみを生じた。

一方、 $S_1$  層および  $S_3$  層(反射法)の荷重下における力学挙動を調べた。Fig. 4.1(c), (d)に示すように、 $S_1$  層及び  $S_3$  層の力学挙動は  $S_2$  層の力学挙動 (Fig. 4.1(a), (b)) とは印象が異なった。 $S_1$  層および  $S_3$  層のセルロース鎖の配向は荷重方向から大きく傾いているため、セルロース鎖に作用する荷重は非常に小さい。引張荷重下では、Fig. 4.3(c)に示すように、木材 Bulk に比べると小さな引張荷重であるがセルロース鎖は木材 Bulk に追従するように、ほぼ同程度の引張ひずみを示した。ただし、その挙動はスムーズではなく、伸縮を繰り返した。一方、圧縮荷重下では様々な荷重-ひずみ関係が得られた。Fig. 4.1(d)に示した 2 つのデータは同一試験片の同時の挙動であるが、両者は異なる挙動を示した。1 つのデータは (○) 木材 Bulk のひずみ以上の圧縮ひずみを示し、その後、縮みと伸びを繰り返す挙動を示した。もう一方のデータ (●) は負荷直後に圧縮ひずみを示し、その後、伸びが止まる挙動を示すなど、荷重-ひずみ関係は特定の傾向を示さなかった。

### 4.2.2 セルロース鎖が剛性を発現および消失する荷重レベル



**Fig 4.2:** Ratio of the start- and end-point loads for rigidity manifestation to the maximum load.

Fig. 4.1 に例示した荷重-ひずみ関係から、セルロース鎖が剛性を発現・消失する荷重 (Start-point および end-point loads) を調べた。Start-point および end-point loads の定義と求め方は第 2 章に示した通りである。図には第 2 章の新材の結果も合わせて示した。Fig. 4.2(a)より、古材の引張負荷に対する Start-point load の荷重レベルは S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層で高く (平均値 42%), S<sub>2</sub> 層では低い (同 11%)。したがって古材の S<sub>2</sub> 層のセルロース鎖は S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層と比べて剛性発現に対する反応が早いと考えられる。この傾向は新材でも同様である。一方、圧縮負荷に対する Start-point load の荷重レベルは S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層で平均値 5%, S<sub>2</sub> 層で同 4%であった。これらより、古材では各層とも引張より圧縮負荷に対する剛性発現に対する反応が早いと考えられた。新材と古材を比較すると、引張負荷に対しては新材より古材の方がいずれの層も荷重レベルが高く、剛性発現に対する反応は遅い。これに対し、圧縮負荷に対しては古材の方が反応が早い。一方、Fig. 4.2(b)に示す End-point load の荷重レベルは、古材と新材で類似の傾向を示した。すなわち、古材の引張負荷に対して S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層で 100%を示すデータが比較的多く、それ以外の場合では、引張の S<sub>2</sub> 層で平均値 88%, 圧縮の S<sub>2</sub> 層で同 99%, 圧縮の S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層で同 64%であった。End-point load で特徴的なのは、古材の圧縮の S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層が他と比べて荷重レベルが小さいことである。

#### 4.2.3 セルロース鎖が剛性

Start-point load と end-point load 間のセルロース鎖の荷重-ひずみ関係を線形回帰分析して、セルロース鎖の剛性を求めた。Fig. 4.3 に結果を示す。Fig. 4.3(a)は剛性  $K_C$  そのもの、Fig. 4.3(b)は剛性  $K_C$  をセルロース鎖の推定含有量 ECA で除した基準化剛性 (standardized KC)  $SK_C$ 、Fig. 4.3(c)は新材に対する古材の剛性比を示す。まず、Fig. 4.3(a)に示す剛性  $K_C$  については、古材と新材は類似の傾向を示した。S<sub>2</sub> 層と S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層の差が明瞭で、S<sub>2</sub> 層の引張剛性は平均値が他に比べて大きい。また、S<sub>2</sub> 層の剛性は引張、圧縮とも S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層よりも大きく、引張で約 5.1 倍、圧縮で約 2.8 倍となっ

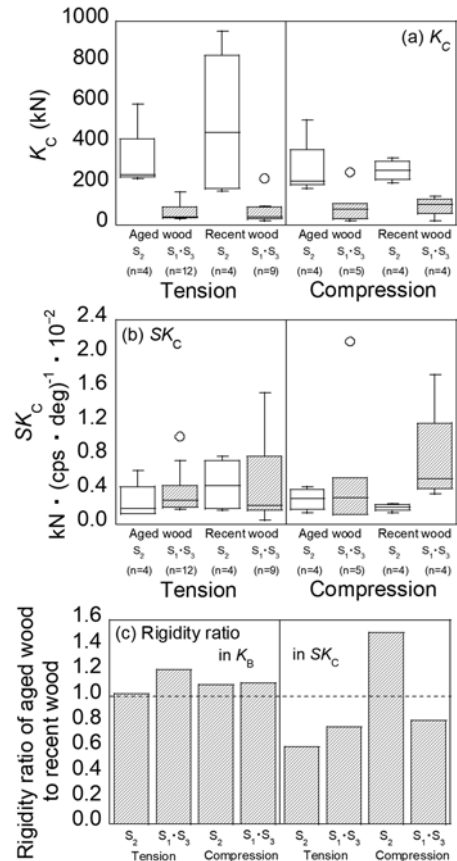


Fig. 4.3 Rigidity of cellulose chain of aged wood and recent wood. (a)  $K_C$ : Rigidity of cellulose obtained from lattice space. (b)  $SK_C$ : ratio of the rigidity of cellulose to the integrated intensity obtained from  $2\theta$  profiles. (c):  $K_C$  and  $SK_C$  obtained from rigidity ratio of aged wood to recent wood.

た。なお、S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層の剛性は引張と圧縮で同程度であり、これは新材と同様であった。しかし、基準化剛性  $SK_C$  では、層間の大小関係が古材と新材では異なる結果となった。Fig. 4.3(b)によれば、古材に関して引張、圧縮ともに各層の  $SK_C$  はほぼ同程度の値 (引張 36%, 圧縮 50%) を示している。新材と比べると、引張では古材のばらつきが小さく、値も小さい。圧縮では古材 S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層の  $SK_C$  が新材に比べて小さいが、S<sub>2</sub> 層とは同程度である。このように、 $K_C$  の場合は、セルロース鎖の量の多い S<sub>2</sub> 層の方が S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層より大きい、セルロース鎖の量で基準化した  $SK_C$  については負荷の違いや層間で大差はなく、この点について古材は新材より明確な結果を示した。なお、層間の比較では  $K_C$  の場合と異なり、S<sub>2</sub> 層の  $SK_C$  は引張、圧縮とも S<sub>1</sub> 層および S<sub>3</sub> 層よりも小さく、引張で約 0.75 倍、圧縮で約 0.45 倍であった。さらに、Fig. 4.3(c)の新材に対する古材の剛性比をみると、剛性  $K_B$



の比は負荷、層の違いにかかわらず古材の方が新材より 2~18%程度大きいですが、これに対して、基準化剛性  $SK_C$  の比では、 $S_2$  層の圧縮負荷に対する  $SK_C$  比以外は、古材の方が 19~39%程度小さい。これに対して、圧縮作用下の  $S_2$  層の  $SK_C$  では、古材が新材より 50%大きい結果となった。

木材バルクの比ヤング率  $K_B$  も圧縮・ $S_2$  層試験用の古材で最も大きく、これを裏付ける結果となっている。セルロース鎖の基準化剛性  $SK_C$  は、木材バルクの剛性と密接な関係を持つパラメータである可能性が考えられる。古材(100~300年程度前に使われていたヒノキ、スギ、アカマツの古材)の無欠点小試験片の強度を調べた研究では、古材の圧縮強度やヤング率が新材と比べて同等以上であることが報告されている。これらの原因として結晶化度の増加が指摘されてきたが、セルロース鎖の基準化剛性 ( $SK_C$ ) 自体も増加していることが明らかになった。

## 第5章

本研究では、木材の強度発現機構を微細構造的に解明することを目的し、強力な光源であるシンクロトロン光と2種類のXRD回折法を用いて、複数の年輪幅を含んだ針葉樹材(アカマツ)試験片の単軸荷重下での力学挙動を木材バルクとセルロース鎖の力学性能を実験的に検討した。その中で、建築用材として250年使用された経年使用材を用い、木材が経年化により生じる影響を力学性能の評価により考察した。その結果、木材繊維方向の垂直方向を基準に透過法と反射法の2種類の幾何学的なXRD回折法を用いることで、木材仮道管細胞壁中の2次壁内に存在するセルロース鎖結晶部は、セルロースマイクロフィブリルの構成方向によって観察可能な層が違ふことがわかった。なお、荷重-ひずみ関係について、古材は新材と同様にセルロース鎖の力学挙動がマクロのものと必ずしも同調していなかったが、本研究で新たな解析を試みたところ、単軸荷重が各層のセルロース鎖における剛性の発現・消失する荷重レベルが異なり、古材が新材と異なる剛性の発現や力学挙動を現すことを明らかにした。今後、本研究で用いられた2種類のXRD回折法および単軸荷重下における木材の力学挙動を検討していく上で、セルロース鎖を拘

束しているものを変化させた場合に現れるセルロース鎖の剛性や力学挙動を注目すべき点の1つであると考えている。例えば、熱処理により細胞壁中の化学成分(ヘミセルロースやマトリックス物質など)が熱分解された際、その熱処理の影響を受けた木材バルクやセルロース鎖の剛性の発現・消失に関する力学挙動などを調べ、処理を施していない木材に対しどのような力学性能の変化が現れるかについて検証することができる。本研究で提案しているセルロース鎖の剛性算出法を用いることは、巨視的に確認できない複雑な微細的な繊維系素材の力学性能に対する情報を提供といった観点から考えると、大きな意義があることであろう。

なお、本研究では、X線の幾何学的な測定方法を通じて木材の細胞壁中の2次壁に存在する  $S_2$  層と  $S_1$  層および  $S_3$  層の分離測定が可能であることを示唆した。このような細胞壁中の異なるセルロース鎖の配向性を持つ構成層を分離測定することによって、仮道管の細胞壁中のセルロースマイクロフィブリルを拘束しているマトリックス物質の変化による力学挙動に対する影響について、様々な観点からの考察が可能になるだろう。